

**BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND****Prioritätsbescheinigung über die Einreichung  
einer Patentanmeldung**

**Aktenzeichen:** 103 55 381.9

**Anmeldetag:** 25. November 2003

**Anmelder/Inhaber:** Covion Organic Semiconductors GmbH,  
65929 Frankfurt/DE

**Bezeichnung:** Organisches Elektrolumineszenzelement

**IPC:** H 01 L 51/30

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 6. Dezember 2004  
Deutsches Patent- und Markenamt  
Der Präsident  
Im Auftrag

AGURKS

BEST AVAILABLE COPY

## Beschreibung

## 5 Organisches Elektrolumineszenzelement

Die vorliegende Erfindung beschreibt ein neuartiges Designprinzip für organische Elektrolumineszenzelemente und dessen Verwendung in darauf basierenden Displays.

10

In einer Reihe von verschiedenartigen Anwendungen, die im weitesten Sinne der Elektronikindustrie zugerechnet werden können, ist der Einsatz organischer Halbleiter als Wirkkomponenten (= Funktionsmaterialien) seit geraumer Zeit Realität bzw. wird in naher Zukunft erwartet.

15

So finden schon seit etlichen Jahren lichtensitive organische Materialien (z. B. Phthalocyanine) sowie organische Ladungstransportmaterialien (i. d. R. Lochtransporter auf Triarylaminbasis) Verwendung in Kopiergeräten.

Der Einsatz spezieller halbleitender organischer Verbindungen, die zum Teil auch zur Emission von Licht im sichtbaren Spektralbereich befähigt sind, steht gerade am Anfang der Markteinführung, zum Beispiel in organischen Elektrolumineszenzvorrichtungen. Deren Einzelbauteile, die Organischen-Lichtemittierenden-Dioden (OLEDs), besitzen ein sehr breites Anwendungsspektrum als:

20

25

1. weiße oder farbige Hinterleuchtungen für monochrome oder mehrfarbige Anzeigeelemente (wie z. B. im Taschenrechner, für Mobiltelefone und andere tragbare Anwendungen),
2. großflächige Anzeigen (wie z. B. Verkehrsschilder, Plakate und andere Anwendungen),
3. Beleuchtungselemente in allen Farben und Formen,
- 30 4. monochrome oder vollfarbige Passiv-Matrix-Displays für tragbare Anwendungen (wie z. B. Mobiltelefone, PDAs, Camcorder und andere Anwendungen),
5. vollfarbige, großflächige, hochauflösende Aktiv-Matrix-Displays für verschiedenste Anwendungen (wie z. B. Mobiltelefone, PDAs, Laptops, Fernseher und andere Anwendungen).

35

Bei diesen Anwendungen ist die Entwicklung teilweise bereits sehr weit fortgeschritten, dennoch besteht immer noch großer Bedarf an technischen Verbesserungen.

Für einfachere OLEDs enthaltende Vorrichtungen ist die Markteinführung bereits erfolgt, wie die im Markt erhältlichen Autoradios der Firma Pioneer, die Mobiltelefone der Firmen Pioneer und SNMD oder eine Digitalkamera der Firma Kodak mit "Organischem Display" belegen. Allerdings gibt es immer noch erhebliche Probleme, die einer dringenden Verbesserung bedürfen:

1. So ist v. a. die OPERATIVE LEBENSDAUER von OLEDs immer noch gering, so daß bis dato nur einfache Anwendungen kommerziell realisiert werden können.
2. Diese relativ kurze Lebensdauer ergibt noch ein Folgeproblem: Gerade für VOLLFARB-Anwendungen ("full-color-displays"), d. h. Displays, welche keine Segmentierungen aufweisen, sondern über die ganze Fläche alle Farben darstellen können, ist es besonders schlecht, wenn hier die einzelnen Farben unterschiedlich schnell altern, wie dies derzeit der Fall ist. Dies führt dazu, daß es schon vor Ende der o. g. Lebensdauer (die in der Regel durch einen Abfall auf 50 % der Anfangshelligkeit definiert ist) zu einer deutlichen Verschiebung des Weiß-Punkts kommt, d. h. die Farbtreue der Darstellung im Display sehr schlecht wird. Um dies zu umgehen, definieren einige Displayhersteller die Lebensdauer als 70 % oder 90 %-Lebensdauer (d. h. Abfall der Anfangshelligkeit auf 70 % bzw. auf 90 % des Anfangswertes). Dies führt aber dazu, daß die Lebensdauer noch kürzer wird.
3. Die Effizienzen, insbesondere die Leistungseffizienz (gemessen in lm/W), von OLEDs sind zwar akzeptabel, aber auch hier sind – gerade für tragbare Anwendungen ("portable applications") – immer noch Verbesserungen erwünscht.
4. Die Farbkoordinaten von OLEDs sind nicht gut genug. Besonders die Kombination von guten Farbkoordinaten mit hoher Effizienz muß noch verbessert werden.
5. Die Alterungsprozesse gehen i. d. R. mit einem Anstieg der Spannung einher. Dieser Effekt macht spannungsgetriebene organische Elektrolumineszenzvorrichtungen, z. B. Displays oder Anzeige-Elemente, schwierig bzw. unmöglich. Eine stromgetriebene Ansteuerung ist aber gerade in diesem Fall aufwendiger und teurer.
6. Die benötigte Betriebsspannung ist gerade bei effizienten phosphoreszierenden OLEDs recht hoch und muß daher weiter verringert werden, um die Leistungseffizienz zu verbessern. Das ist gerade für tragbare Anwendungen von großer Bedeutung.
7. Der benötigte Betriebsstrom ist ebenfalls in den letzten Jahren verringert worden, muß aber noch weiter verringert werden, um die Leistungseffizienz zu verbessern. Das ist gerade für tragbare Anwendungen besonders wichtig.

8. Der Aufbau der OLEDs ist durch die Vielzahl der organischen Schichten komplex und teuer; eine Reduktion der Schichten ist für die Produktion sehr wichtig, um die Produktionsschritte zu verringern und damit die Kosten zu senken und die Produktionssicherheit zu erhöhen.

5

Die oben unter 1. bis 8. genannten Gründe machen Verbesserungen bei der Herstellung von OLEDs notwendig.

Eine Entwicklung hierzu, die sich in den letzten Jahren abzeichnet, ist der Einsatz von metallorganischen Komplexen, die Phosphoreszenz statt Fluoreszenz zeigen

10 [M. A. Baldo, S. Lamansky, P. E. Burrows, M. E. Thompson, S. R. Forrest, Applied Physics Letters, **1999**, 75, 4-6].

Aus quantenmechanischen Gründen ist unter Verwendung metallorganischer Verbindungen eine bis zu vierfache Quanten-, Energie- und Leistungseffizienz

15

möglich. Ob sich diese neue Entwicklung durchsetzen wird, hängt zum einen stark davon ab, ob entsprechende Device-Kompositionen gefunden werden können, die diese Vorteile (Triplet-Emission = Phosphoreszenz gegenüber Singulett-Emission = Fluoreszenz) auch in den OLEDs umsetzen können. Als wesentliche Bedingungen für die praktische Anwendung sind hier insbesondere eine hohe operative Lebensdauer, eine hohe Stabilität gegenüber Temperaturbelastung und eine

20

niedrige Einsatz- und Betriebsspannung verbunden mit einer hohen Leistungseffizienz, um mobile Applikationen zu ermöglichen, zu nennen.

Der allgemeine Aufbau von fluoreszierenden organischen

Elektrolumineszenzvorrichtungen ist beispielsweise in US 4,539,507 und

25

US 5,151,629 beschrieben.

Üblicherweise besteht eine organische Elektrolumineszenzvorrichtung aus mehreren Schichten, die mittels Vakuummethoden oder unterschiedlicher Druckmethoden

aufeinander aufgebracht werden. Für phosphoreszierende organische Elektrolumineszenzvorrichtungen sind diese Schichten im einzelnen:

30

1. Eine Trägerplatte = Substrat (üblicherweise Glas oder Kunststoffolie).

2. Eine transparente Anode (üblicherweise Indium-Zinn-Oxid, ITO).

3. Eine Lochinjektions-Schicht (Hole Injection Layer = HIL): z. B. auf der Basis von Kupfer-phthalocyanin (CuPc) oder leitfähigen Polymeren, wie Polyanilin (PANI) oder Polythiophen-Derivaten (wie PEDOT).

35

4. Eine oder mehrere Lochtransport-Schichten (Hole Transport Layer = HTL): üblicherweise auf der Basis von Triarylamin-Derivaten, z. B. 4,4',4''-Tris(N-1-naphthyl-N-phenyl-amino)-triphenylamin (NaphDATA) als erste Schicht und N,N'-Di(naphth-1-yl)-N,N'-diphenyl-benzidin (NPB) als zweite Lochtransportschicht.

5. Eine oder mehrere Emissions-Schichten (Emission Layer = EML): üblicherweise aus mit Phosphoreszenzfarbstoffen, z. B. Tris-(phenylpyridyl)-iridium ( $\text{Ir(PPy)}_3$ ) oder Tris-(2-benzothiophenyl-pyridyl)-iridium ( $\text{Ir(BTP)}_3$ ), dotierten Matrixmaterialien, wie z. B. 4,4'-Bis(carbazol-9-yl)-biphenyl (CBP). Die Emissions-Schicht kann aber auch aus Polymeren, Mischungen von Polymeren, Mischungen von Polymeren und niedermolekularen Verbindungen oder Mischungen verschiedener niedermolekularer Verbindungen bestehen.
6. Eine Lochblockier-Schicht (Hole-Blocking-Layer = HBL): üblicherweise aus BCP (2,9-Dimethyl-4,7-diphenyl-1,10-phenanthrolin = Bathocuproin) oder Bis-(2-methyl-8-quinolinolato)-(4-phenyl-phenolato)-aluminium(III) ( $\text{BAIq}$ ).
7. Eine Elektronentransport-Schicht (Electron Transport Layer = ETL): meist auf Basis von Aluminium-tris-8-hydroxychinolinat ( $\text{AlQ}_3$ ).
8. Eine Elektroneninjektions-Schicht (Electron Injection Layer = EIL) (auch teilweise Isolatorschicht (ISL) genannt): eine dünne Schicht bestehend aus einem Material mit einer hohen Dielektrizitätskonstanten, wie z. B.  $\text{LiF}$ ,  $\text{Li}_2\text{O}$ ,  $\text{BaF}_2$ ,  $\text{MgO}$ ,  $\text{NaF}$ .
9. Eine Kathode: hier werden in der Regel Metalle, Metallkombinationen oder Metallegierungen mit niedriger Austrittsarbeit verwendet, so z. B. Ca, Ba, Cs, Mg, Al, In, Mg/Ag.

Diese ganze Vorrichtung wird entsprechend (je nach Anwendung) strukturiert, kontaktiert und schließlich auch hermetisch versiegelt, da sich i. d. R. die Lebensdauer derartiger Vorrichtungen bei Anwesenheit von Wasser und/oder Luft drastisch verkürzt. Das Gleiche gilt auch für sogenannte invertierte Strukturen, bei denen das Licht aus der Kathode ausgekoppelt wird. Bei diesen invertierten OLEDs besteht die Anode z. B. aus  $\text{Al/Ni/NiOx}$  oder  $\text{Al/Pt/PtOx}$  oder anderen Metall/Metalloxid-Kombinationen, die ein höchstes besetztes Molekülorbital (HOMO) mit einer Energie von größer 5 eV besitzen. Die Kathode besteht dabei aus den gleichen Materialien, die in Punkt 8 und 9 beschrieben sind, mit dem Unterschied, daß das Metall, wie z. B. Ca, Ba, Mg, Al, In usw., sehr dünn und damit transparent ist. Die Schichtdicke liegt unter 50 nm, besser unter 30 nm, noch besser unter 10 nm. Auf diese transparente Kathode kann noch ein weiteres transparentes Material aufgebracht werden, z. B. ITO (Indium-Zinn-Oxid), IZO (Indium-Zink-Oxid) usw..

Seit längerem ist die Verwendung von Lochblockierschichten (HBL) folgend auf die Emitterschicht, bestehend aus einem phosphoreszierenden Emitter und einem Matrixmaterial, zur Steigerung der Effizienz und der Lebensdauer in organischen Elektrolumineszenzvorrichtungen bekannt.

Wie aus dem oben beschriebenen Aufbau einer phosphoreszierenden OLED hervorgeht, ist dieser sehr aufwendig, da viele Schichten, die wiederum aus vielen verschiedenen Materialien bestehen, nacheinander aufgebracht werden müssen, was den Herstellungsprozeß von kommerziellen OLEDs sehr kompliziert macht.

- 5 Diese Strukturen werden zumeist nach dem Kriterium der größten Effizienz optimiert. Dabei kommt häufig BCP als Lochblockièrmaterial (HBM) zum Einsatz, was allerdings den großen Nachteil hat, daß es die Lebensdauer der OLEDs stark einschränkt.
- 10 Bislang gab es schon mehrere Ansätze, dieses Problem zu lösen. Dabei werden vor allem neue Klassen von Matrixmaterialien vorgeschlagen, die die Verwendung von HBLs überflüssig machen.
  - EP 1308494 beschreibt OLEDs, bei denen die Emissionsschicht (EML) aus einem Matrixmaterial mit elektronenleitenden Eigenschaften dotiert mit einem phosphoreszierenden Emitter besteht. Nachteil der hier beschriebenen OLEDs ist, daß in diesem Aufbau nicht die höchsten Effizienzen erzielt werden. Es wird lediglich die Lebensdauer verbessert, was aber mit einer Einbuße an Effizienz bezahlt wird.
  - US 2003/0146443 beschreibt OLEDs, bei denen die Emissionsschicht (EML) aus einem Matrixmaterial mit Elektronen leitenden Eigenschaften dotiert mit einem phosphoreszierenden Emitter besteht. Dabei vereinfacht sich der Schichtaufbau, da nur noch eine weitere Lochtransportschicht verwendet wird. Diese OLEDs erreichen jedoch nicht die gleiche Effizienz wie herkömmlich aufgebaute OLEDs, d. h. unter Verwendung einer HBL. Zum Teil beobachtet man auch eine, wenn auch geringe, Emission der verwendeten Matrix. Die Autoren kritisieren am Stand der Technik, daß die Lebensdauer der herkömmlichen OLEDs zu gering ist, da die verwendeten Materialien in der HBL eine zu geringe Stabilität haben. Sie machen jedoch selbst keine Angaben zu den Lebensdauern und Stabilitäten der von ihnen hergestellten Strukturen. Dies könnte die Vermutung nahelegen, daß die dort vorgestellten Strukturen das Problem der zu geringen Stabilität nicht lösen.
  - C. Adachi *et al.* (*Organic Electronics* 2001, 2, 37) beschreiben phosphoreszierende OLEDs, in denen die carbazolhaltige Matrix (CBP) nicht vollständig mit dem Triplettemitter dotiert ist und in denen kein Lochblockièrmaterial verwendet wird, wodurch sich eine undotierte CBP-Schicht zwischen Emitterschicht und Kathode befindet. Jedoch werden in diesem Fall deutlich schlechtere Effizienzen (im Bereich von mehr als einer Größenordnung) erreicht, als wenn die Matrixschicht vollständig dotiert ist, unanabhängig davon, ob

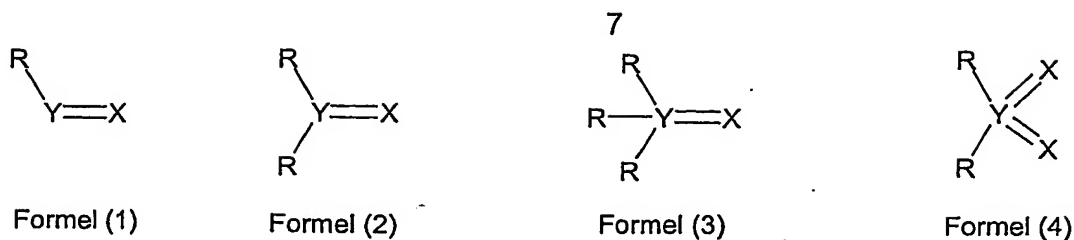
eine Lochblockierschicht verwendet wird oder nicht. Je größer der undotierte Anteil ist, umso schlechter wird die erzielte Effizienz. Es ergeben sich hier also deutliche Nachteile, wenn die Matrix nur teilweise dotiert ist. Weiterhin zeigt sich, dass sich die Emissionsfarbe des Devices deutlich verschiebt, wenn die Matrix nur teilweise dotiert ist. Während das Device mit der vollständig dotierten Matrix die grüne Emission des Triplett-Emitters zeigt, verschiebt sich die Emissionsfarbe bei Verwendung der teildotierten Matrix zur blauen Emission des Lochtransportmaterials. Es ist also offensichtlich, dass sich Matrixmaterialien auf Carbazolbasis nicht für eine unvollständige Dotierung eignen.

Aus dieser Beschreibung des Stands der Technik ist klar, daß insbesondere für effiziente OLEDs bis dato lochblockierende Materialien (HBM), wie z. B. BCP oder BALq, benötigt werden, die jedoch zu unbefriedigenden Nebeneffekten führen. Es wurde nun überraschend gefunden, daß OLEDs, die dem erfindungsgemäßen – im folgenden aufgeführten – Designprinzip entsprechen, deutliche Verbesserungen gegenüber diesem Stand der Technik aufweisen. Außerdem wurde gefunden, daß mit diesem Designprinzip nicht notwendigerweise eine separate Elektronentransportschicht verwendet werden muß, wodurch sich der Aufbau der OLED wesentlich vereinfacht. Außerdem werden bei diesem Aufbau deutlich höhere Leistungseffizienzen erreicht.

Gegenstand der Erfindung ist deshalb eine organische Elektrolumineszenzvorrichtung, enthaltend eine Anode, eine Kathode und mindestens eine Matrixschicht, enthaltend mindestens ein Matrixmaterial, welches eine Struktureinheit der Formel  $Y=X$  enthält, wobei X mindestens ein nicht-bindendes Elektronenpaar aufweist und wobei der Rest Y für C, P, As, Sb, Bi, S, Se, Te und der Rest X für N, O, S, Se, Te, und welches mit mindestens einem phosphoreszierenden Emitter dotiert ist, dadurch gekennzeichnet, daß sich die Dotierungszone des Emitters in der Matrix senkrecht zur Schicht nur über einen Teil der Matrixschicht erstreckt.

In der vorstehend genannten Formel  $Y=X$  steht „=“ für eine Doppelbindung.

Bevorzugte ist eine organische Elektrolumineszenzvorrichtung dadurch gekennzeichnet, daß das Matrixmaterial der Formel  $Y=X$  eine Verbindung gemäß Formel (1) bis (4) (Schema 1) enthält,



(Schema 1)

wobei die verwendeten Symbole folgende Bedeutung haben:

Y ist gleich C in Formel (2) und ist gleich P, As, Sb oder Bi in Formel (1) und (3) und ist gleich S, Se oder Te in Formel (1), (2) und (4);

X ist bei jedem Auftreten gleich oder verschieden  $\text{NR}^1$ , O, S, Se, Te;

R ist bei jedem Auftreten gleich oder verschieden H, F, CN,  $\text{N}(\text{R}^1)_2$ , eine geradkettige, verzweigte oder cyclische Alkyl-, Alkoxy- oder Thioalkoxygruppe mit 1 bis 40 C-Atomen, die mit  $\text{R}^1$  substituiert oder auch unsubstituiert sein kann, wobei ein oder mehrere nicht benachbarte  $\text{CH}_2$ -Gruppen durch  $-\text{R}^2\text{C}=\text{CR}^2-$ ,  $-\text{C}\equiv\text{C}-$ ,  $\text{Si}(\text{R}^2)_2$ ,  $\text{Ge}(\text{R}^2)_2$ ,  $\text{Sn}(\text{R}^2)_2$ , C=O, C=S, C=Se,  $\text{C}=\text{NR}^2$ , -O-, -S-,  $-\text{NR}^2-$  oder  $-\text{CONR}^2-$  ersetzt sein können und wobei ein oder mehrere H-Atome durch F, Cl, Br, I, CN,  $\text{B}(\text{R}^2)_2$ ,  $\text{Si}(\text{R}^2)_3$  oder  $\text{NO}_2$  ersetzt sein können, oder eine Aryl-, Aryloxy- oder Heteroarylgruppe mit 1 bis 40 C-Atomen, die durch ein oder mehrere Reste  $\text{R}^1$ , CN,  $\text{B}(\text{R}^2)_2$  oder  $\text{Si}(\text{R}^2)_3$  substituiert sein können, wobei mehrere Substituenten R miteinander ein mono- oder polycyclisches, aliphatisches oder aromatisches Ringsystem bilden können;

$\text{R}^1$  ist bei jedem Auftreten gleich oder verschieden eine geradkettige, verzweigte oder cyclische Alkyl- oder Alkoxykette mit 1 bis 22 C-Atomen, in der auch ein oder mehrere nicht benachbarte C-Atome durch  $-\text{R}^2\text{C}=\text{CR}^2-$ ,  $-\text{C}\equiv\text{C}-$ ,  $\text{Si}(\text{R}^2)_2$ ,  $\text{Ge}(\text{R}^2)_2$ ,  $\text{Sn}(\text{R}^2)_2$ ,  $-\text{NR}^2-$ , -O-, -S-,  $-\text{CO}-\text{O}-$ ,  $-\text{O}-\text{CO}-\text{O}-$  ersetzt sein können, wobei auch ein oder mehrere H-Atome durch Fluor ersetzt sein können, eine Aryl-, Heteroaryl- oder Aryloxygruppe mit 1 bis 40 C-Atomen, welche auch durch ein oder mehrere Reste  $\text{R}^2$  substituiert sein können oder OH oder  $\text{N}(\text{R}^2)_2$ ;

$\text{R}^2$  ist bei jedem Auftreten gleich oder verschieden H oder ein aliphatischer oder aromatischer Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 20 C-Atomen;

und mit der Maßgabe, daß die Molmasse des Matrixmaterials größer 150 g/mol ist.

Matrixmaterialien aus den Klassen der Ketone und Imine sind beispielsweise beschrieben in der nicht offengelegten Patentanmeldung DE 10317556.3;

Matrixmaterialien aus den Klassen der Phosphinoxide, der Phosphinsulfide, der Phosphinselenide, der Phosphazene, der Sulfone, der Sulfoxide sind beispielsweise



beschrieben in der nicht offengelegten Patentanmeldung DE 10330761.3. Bevorzugt sind Ketone, Phosphinoxide und Sulfoxide, also Materialien, für die gilt  $Y = C, P, S$  und  $X = O$ ; besonders bevorzugt sind Ketone, also Materialien, für die gilt  $Y = C$  und  $X = O$ .

5

Als besonders geeignete Matrixmaterialien haben sich Verbindungen erwiesen, die nicht planar aufgebaut sind. An der Struktureinheit der Form  $Y=X$  können entsprechende Substituenten für eine Abweichung der Gesamtstruktur von der Planarität sorgen. Dies ist insbesondere dann der Fall, wenn mindestens einer der Substituenten R wenigstens ein  $sp^3$ -hybridisiertes Kohlenstoff-, Silicium-, Germanium- und/oder Stickstoffatom enthält, welches dadurch näherungsweise tetraedrische oder im Fall von Stickstoff pyramidale Bindungsgeometrie aufweist. Um eine deutliche Abweichung von der Planarität zu erreichen, ist es bevorzugt, wenn wenigstens eines der  $sp^3$ -hybridisierten Atome ein sekundäres, tertiäres oder quartäres Atom ist, besonders bevorzugt ein tertiäres oder quartäres Atom, im Fall von Kohlenstoff, Silicium oder Germanium ganz besonders bevorzugt ist quartäres Atom ist.

10

Unter einem sekundären, tertiären oder quartären Atom wird ein Atom mit zwei, drei bzw. vier Substituenten ungleich Wasserstoff verstanden.

15

Bevorzugt sind Verbindungen, die in mindestens einem der Reste R ein 9,9'-Spirobifluorenderivat, bevorzugt verknüpft über die 2- und/oder 2,7- und/oder 2,2'-und/oder 2,2',7- und/oder 2,2',7,7'-Position, ein 9,9-disubstituiertes Fluorenderivat, bevorzugt verknüpft über die 2- und/oder 2,7-Position, ein 6,6- und/oder 12,12-di- oder tetrasubstituiertes Indenofluorenderivat, ein Triptycenderivat, bevorzugt verknüpft über die 9- und/oder 10-Position, ein Dihydrophenanthren-Derivat, bevorzugt verknüpft über die 2- und/oder 2,7-Position, ein Hexaarylbenzolderivat, bevorzugt verknüpft über die *p*-Position am/an den Aromaten, oder ein Tetraarylmethanderivat, bevorzugt verknüpft über die *p*-Position am/an den Aromaten, enthalten.

20

25

Besonders bevorzugt sind Verbindungen, die in mindestens einem der Reste R ein 9,9'-Spirobifluorenderivat enthalten.

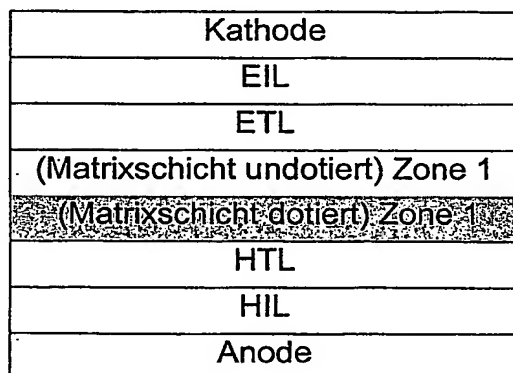
30

Weiterhin bevorzugt ist eine organische Elektrolumineszenzvorrichtung dadurch gekennzeichnet, daß die Glasstemperatur  $T_g$  des Matrixmaterials größer als 100 °C, bevorzugt größer 120 °C, ganz besonders bevorzugt größer 140 °C ist.

Es kann bevorzugt sein, wenn die organische Elektrolumineszenzvorrichtung außer den oben genannten Schichten noch eine oder mehrere Lochinjektions- (HIL) und/oder Lochtransportschichten (HTL) enthält. Außerdem kann es bevorzugt sein, wenn die organische Elektrolumineszenzvorrichtung außer den oben genannten

- 5 Schichten noch eine oder mehrere Elektronentransport- (ETL) und/oder Elektroneninjectionsschichten (EIL) enthält.

Bevorzugt ist eine organische Elektrolumineszenzvorrichtung dadurch gekennzeichnet, daß eine oder mehrere Dotierungszonen in der Matrixschicht und  
 10 eine oder mehrere undotierte Zonen in der Matrixschicht vorhanden sind und eine undotierte Zone in der Matrixschicht an die Elektronentransportschicht ETL (bzw. EIL bzw. Kathode) angrenzt und eine Dotierungszone in der Matrixschicht an die Lochtransportschicht HTL (bzw. HIL bzw. Anode) angrenzt.



Kathode
EIL
ETL
(Matrixschicht undotiert) Zone 1
(Matrixschicht dotiert) Zone 1
HTL
HIL
Anode

15 Figur 1

Eine mögliche Ausführungsform der Erfindung ist in Figur 1 beschrieben. Die Matrixschicht besteht hier aus einem dotierten und undotierten Bereich, wobei der  
 20 dotierte Bereich an die HTL angrenzt und der undotierte an die ETL angrenzt. Auch wenn das aus der Beschreibung hervorgeht, sei darauf hingewiesen, daß das Matrixmaterial in der dotierten und undotierten Matrixschicht (beide Zone 1) identisch ist.

Kathode
EIL
ETL
(Matrixschicht undotiert) Zone 2
(Matrixschicht dotiert) Zone 2
(Matrixschicht undotiert) Zone 1
(Matrixschicht dotiert) Zone 1
HTL
HIL
Anode

Figur 2

Eine weitere mögliche Ausführungsform der Erfindung ist in Figur 2 beschrieben.

- 5 Die Matrixschicht besteht aus zwei dotierten und undotierten Bereichen, wobei ein dotierter Bereich an die HTL angrenzt und ein undotierter an die ETL angrenzt. Auch wenn das aus der Beschreibung hervorgeht, sei nochmals explizit darauf hingewiesen, daß das Matrixmaterial in jeder einzelnen Zone identisch ist, bevorzugt ist es in allen Zonen identisch.

- 10 Die Matrixschicht kann auch aus drei oder mehr dotierten und undotierten Bereichen bestehen. Zwei oder drei sich abwechselnde dotierte und undotierte Bereiche sind besonders für weiß emittierende OLEDs geeignet.

- 15 Weiterhin bevorzugt ist eine organische Elektrolumineszenzvorrichtung dadurch gekennzeichnet, daß eine oder mehrere Dotierungszonen in der Matrixschicht und eine oder mehrere undotierte Zonen in der Matrixschicht vorhanden sind und eine undotierte Zone in der Matrixschicht an die Lochtransportschicht HTL (bzw. HIL bzw. Anode) angrenzt und eine Dotierungszone in der Matrixschicht an die
- 20 Elektronentransportschicht ETL (bzw. EIL bzw. Kathode) angrenzt.

Kathode
EIL
ETL
(Matrixschicht dotiert) Zone 1
(Matrixschicht undotiert) Zone 1
HTL
HIL
Anode

Figur 3

Eine weitere mögliche Ausführungsform der Erfindung ist in Figur 3 beschrieben. Die Matrixschicht besteht aus einem dotierten und undotierten Bereich, wobei der dotierte Bereich an die ETL angrenzt und der undotierte Bereich an die HTL angrenzt. Auch wenn das aus der Beschreibung hervorgeht, sei nochmals explizit darauf hingewiesen, daß das Matrixmaterial in der dotierten und undotierten Matrixschicht (beide Zone 1) identisch ist.

Kathode
EIL
ETL
(Matrixschicht dotiert) Zone 2
(Matrixschicht undotiert) Zone 2
(Matrixschicht dotiert) Zone 1
(Matrixschicht undotiert) Zone 1
HTL
HIL
Anode

Figur 4

Eine weitere mögliche Ausführungsform der Erfindung ist in Figur 4 beschrieben. Die Matrixschicht besteht aus zwei dotierten und undotierten Bereichen, wobei ein dotierter Bereich an die ETL angrenzt und ein undotierter an die HTL angrenzt. Auch wenn das aus der Beschreibung hervorgeht, sei nochmals explizit darauf hingewiesen, daß das Matrixmaterial in jeder einzelnen Zone identisch ist, bevorzugt ist es in allen Zonen identisch.

Bevorzugt ist eine organische Elektrolumineszenzvorrichtung dadurch gekennzeichnet, daß eine oder mehrere Dotierungszonen in der Matrixschicht und

eine oder mehrere undotierte Zonen in der Matrixschicht vorhanden sind und eine undotierte Zone in der Matrixschicht an die Elektronentransportschicht ETL (bzw. EIL bzw. Kathode) und eine undotierte Zone an die Lochtransportschicht HTL (bzw. HIL bzw. Anode) angrenzt.

5

Kathode
EIL
ETL
(Matrixschicht undotiert) Zone 1
(Matrixschicht dotiert) Zone 1
(Matrixschicht undotiert) Zone 1
HTL
HIL
Anode

Figur 5

Eine weitere mögliche Ausführungsform der Erfindung ist in Figur 5 beschrieben. Die Matrixschicht besteht aus einem dotierten und zwei undotierten Bereichen, wobei die beiden undotierten Bereiche an die HTL und an die ETL angrenzen und der dotierte Bereich dazwischen liegt. Auch wenn das aus der Beschreibung hervorgeht, sei nochmals explizit darauf hingewiesen, daß das Matrixmaterial in der dotierten und undotierten Matrixschicht (beide Zone 1) identisch ist.

10

Kathode
EIL
ETL
(Matrixschicht undotiert) Zone 1
(Matrixschicht dotiert) Zone 1
(Matrixschicht undotiert) Zone 1 oder 2
(Matrixschicht dotiert) Zone 2
(Matrixschicht undotiert) Zone 2
HTL
HIL
Anode

15 Figur 6

Eine weitere mögliche Ausführungsform der Erfindung ist in Figur 6 beschrieben.

Die Matrixschicht besteht aus zwei dotierten und drei undotierten Bereichen, wobei undotierte Bereiche an die HTL und an die ETL angrenzen und dazwischen abwechselnd dotierte und undotierte Bereiche liegen. Auch wenn das aus der Beschreibung hervorgeht, sei nochmals explizit darauf hingewiesen, daß das

5 Matrixmaterial in der jeder einzelnen Zone identisch ist, bevorzugt ist es in allen Zonen identisch. In gleicher Weise kann die Matrixschicht auch aus drei oder mehr dotierten und vier oder mehr undotierten Bereichen bestehen.

Bevorzugt ist eine organische Elektrolumineszenzvorrichtung dadurch

10 gekennzeichnet, daß eine oder mehrere Dotierungszonen in der Matrixschicht und eine oder mehrere undotierte Zonen in der Matrixschicht vorhanden sind und eine Dotierungszone in der Matrixschicht an die Elektronentransportschicht ETL (bzw. EIL bzw. Kathode) und eine Dotierungszone an die Lochtransportschicht HTL (bzw. HIL bzw. Anode) angrenzt.

Kathode
EIL
ETL
(Matrixschicht dotiert) Zone 1
(Matrixschicht undotiert) Zone 1 oder 2
(Matrixschicht dotiert) Zone 2
HTL
HIL
Anode

Figur 7

Eine weitere mögliche Ausführungsform der Erfindung ist in Figur 7 beschrieben. Die Matrixschicht besteht aus einem undotierten und zwei dotierten Bereichen, wobei die beiden dotierten Bereiche an die HTL und an die ETL angrenzen und der undotierte Bereich dazwischen liegt. Auch wenn das aus der Beschreibung

20 hervorgeht, sei nochmals explizit darauf hingewiesen, daß das Matrixmaterial in jeder einzelnen Zone identisch ist, bevorzugt ist es in allen Zonen identisch.

Kathode
EIL
ETL
(Matrixschicht dotiert) Zone 1
(Matrixschicht undotiert) Zone 1
(Matrixschicht dotiert) Zone 1 oder 2
(Matrixschicht undotiert) Zone 2
(Matrixschicht dotiert) Zone 2
HTL
HIL
Anode

Figur 8

Eine weitere mögliche Ausführungsform der Erfindung ist in Figur 8 beschrieben. Die Matrixschicht besteht aus zwei undotierten und drei dotierten Bereichen, wobei

5 dotierte Bereiche an die HTL und an die ETL angrenzen und dazwischen abwechselnd dotierte und undotierte Bereiche liegen. Auch wenn das aus der Beschreibung hervorgeht, sei nochmals explizit darauf hingewiesen, daß das Matrixmaterial in jeder einzelnen Zone identisch ist, bevorzugt ist es in allen Zonen identisch. In gleicher Weise kann die Matrixschicht auch aus vier oder mehr

10 dotierten und drei oder mehr undotierten Bereichen bestehen.

In verschiedenen Zonen können prinzipiell verschiedene Matrixmaterialien eingesetzt werden, mit der Maßgabe, daß mindestens eines eine Struktureinheit  $X=Y$  enthält, wie oben beschrieben. Es müssen jedoch nicht alle Matrixmaterialien

15 diese Struktureinheiten enthalten. Aus Gründen der Praktikabilität und der Wirtschaftlichkeit hat es sich jedoch als vorteilhaft erwiesen, wenn in mehreren Zonen die gleichen Matrixmaterialien verwendet werden; besonders bevorzugt werden die gleichen Matrixmaterialien in mehreren angrenzenden Zonen verwendet; ganz besonders bevorzugt werden für alle Zonen die gleichen Matrixmaterialien

20 verwendet. In einer weiteren bevorzugten Ausführung wird einer jeden Zone eine andere Emissionsfarbe, welche durch den Dotanden bestimmt wird, zugeordnet.

In einer bevorzugten Ausführungsform der Erfindung enthält die erfindungsgemäße Elektrolumineszenzvorrichtung keine separate Lochblockierschicht (HBL).

25 In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform der Erfindung enthält die erfindungsgemäße Elektrolumineszenzvorrichtung keine separate

Lochblockierschicht (HBL) und keine separate Elektronentransportschicht (ETL), das heißt, der dotierte bzw. undotierte Teil der Matrixschicht grenzt direkt an die Kathode bzw. an die Elektroneninjectionsschicht.

5 Die erfindungsgemäße Elektrolumineszenzvorrichtung enthält auch nicht notwendigerweise eine Lochinjektions- und/oder Lochtransportschicht (HIL bzw. HTL), d. h. der dotierte bzw. undotierte Teil der Matrixschicht kann auch direkt an die Lochinjektionsschicht bzw. direkt an die Anode grenzen.

10 Bevorzugt ist eine organische Elektrolumineszenzvorrichtung dadurch gekennzeichnet, daß die Schichtdicke der Dotierungszone zwischen 98 % und 40 %, bevorzugt zwischen 90 % und 60 % der Matrixschichtdicke beträgt.

15 Bevorzugt ist eine organische Elektrolumineszenzvorrichtung dadurch gekennzeichnet, daß die Schichtdicke der Matrixschicht eine Dicke von 1 bis 150 nm aufweist, bevorzugt von 5 bis 100 nm.

20 Bevorzugt ist eine organische Elektrolumineszenzvorrichtung dadurch gekennzeichnet, daß das Matrixmaterial im sichtbaren Spektralbereich zwischen 380 nm und 750 nm bei einer Filmdicke von 30 nm eine Extinktion kleiner 0.2, bevorzugt kleiner 0.1, besonders bevorzugt kleiner 0.05, aufweist.

25 Weiterhin bevorzugt ist eine organische Elektrolumineszenzvorrichtung dadurch gekennzeichnet, daß als phosphoreszierender Emitter eine Verbindung enthalten ist, die mindestens ein Atom der Ordnungszahl größer 36 und kleiner 84 aufweist.

30 Besonders bevorzugt ist eine organische Elektrolumineszenzvorrichtung dadurch gekennzeichnet, daß der phosphoreszierende Emitter mindestens ein Element der Ordnungszahl größer 56 und kleiner 80, ganz besonders bevorzugt Molybdän, Wolfram, Rhenium, Ruthenium, Osmium, Rhodium, Iridium, Palladium, Platin, Silber, Gold oder Europium, beispielsweise gemäß den Patentanmeldungen WO 98/01011, US 02/0034656, US 03/0022019, WO 00/70655, WO 01/41512, WO 02/02714, WO 02/15645, EP 1191613, EP 1191612, EP 1191614, WO 03/040257 und DE 10215010.9 enthält.

35 Weiterhin bevorzugt ist eine organische Elektrolumineszenzvorrichtung dadurch gekennzeichnet, daß eine oder mehrere Schichten mit einem Sublimationsverfahren beschichtet werden. Dabei werden die niedermolekularen Materialien in Vakuum-



Sublimationsanlagen bei einem Druck kleiner  $10^{-5}$  mbar, bevorzugt kleiner  $10^{-6}$  mbar, besonders bevorzugt kleiner  $10^{-7}$  mbar aufgedampft.

Bevorzugt ist ebenfalls eine organische Elektrolumineszenzvorrichtung dadurch gekennzeichnet, daß eine oder mehrere Schichten mit dem OVPD (Organic Vapour Phase Deposition) Verfahren oder mit Hilfe einer Trägergassublimation beschichtet werden. Dabei werden die niedermolekularen Materialien bei einem Druck zwischen  $10^{-5}$  mbar und 1 bar aufgebracht.

Weiterhin bevorzugt ist eine organische Elektrolumineszenzvorrichtung dadurch gekennzeichnet, daß eine oder mehrere Schichten mit einem beliebigen Druckverfahren, wie z. B. Flexodruck oder Offsetdruck, besonders bevorzugt LITI (Light Induced Thermal Imaging, Thermotransferdruck) und Ink-Jet Druck (Tintenstrahl-Druck), beschichtet werden.

Die oben beschriebenen emittierenden Vorrichtungen weisen nun folgende überraschende Vorteile gegenüber dem Stand der Technik auf:

1. Die Effizienz entsprechender Vorrichtungen wird höher im Vergleich zu Systemen, die nicht dem erfindungsgemäßen Design folgen d. h. eine oder mehrere HBLs enthalten. Dies ist insbesondere überraschend, da ein vergleichbarer Aufbau bei Devices, die carbazolhaltige Matrices verwenden, zu einem starken Rückgang der Effizienz führt (vgl. Adachi *et al.*, *Organic Electronics* 2001, 2, 37).
2. Die Stabilität und die Lebensdauer entsprechender Vorrichtungen wird höher im Vergleich zu Systemen, die nicht dem erfindungsgemäßen Design folgen d. h. eine oder mehrere HBLs enthalten.
3. Die Betriebsspannungen werden wesentlich erniedrigt; dadurch erhöht sich die Leistungseffizienz. Dies gilt insbesondere, wenn keine separate Elektronentransportschicht verwendet wird, d. h. wenn die Matrixschicht direkt an die Kathode bzw. die Elektroneninjectionsschicht grenzt.
4. Die Schichtaufbau ist einfacher, weil mindestens eine organische Schicht weniger verwendet wird. Ein besonders deutlicher Vorteil ist gegeben, wenn die Matrixschicht direkt an die Kathode bzw. die Elektroneninjectionsschicht grenzt, weil dann weder eine separate Lochblockierschicht, noch eine separate Elektronentransportschicht verwendet werden müssen.
5. Der Produktionsaufwand wird geringer, weil mindestens eine organische Schicht weniger verwendet wird. Dies ist ein erheblicher Anteil im Produktionsprozeß, da bei der herkömmlichen Herstellungsweise für jede organische Schicht eine

separate Aufdampfanlage verwendet wird, wodurch mindestens eine derartige Anlage somit eingespart wird/komplett entfällt.

6. Das Emissionsspektrum ist identisch zum Emissionsspektrum, das mit einer dotierten Matrix und einem Lochblockiermaterial erhalten wird. Dies ist essentiell für die Anwendung und ist insbesondere ein überraschendes Ergebnis, da eine teilweise dotierte Matrix aus basierend auf carbazolhaltigen Verbindungen zu extremen Änderungen des Emissionsspektrums führt, so daß die Emission schließlich nicht mehr aus dem Triplettmitter, sondern aus dem Lochtransportmaterial kommt (vgl. Adachi *et al.*, *Organic Electronic* 2001, 2, 37); ein Device mit einer solchen Farbverschiebung ist für die Anwendung unbrauchbar.

Details zu den hier gemachten Angaben finden sich in den unten beschriebenen Beispielen.

Im vorliegenden Anmeldetext und auch in den weiteren folgenden Beispielen wird nur auf organische Leuchtdioden und die entsprechenden Displays abgezielt. Trotz dieser Beschränkung der Beschreibung ist es für den Fachmann ohne weiteres erfinderisches Zutun möglich, das entsprechende erfindungsgemäße Design auch für andere, verwandte Vorrichtungen, z. B. für organische Solarzellen (O-SCs), organische Feldeffekttransistoren (O-FETs) oder auch organische Laserdioden (O-Laser), um nur einige weitere Anwendungen zu nennen, zu verwenden.

#### **Herstellung und Charakterisierung von organischen Elektrolumineszenzvorrichtungen, die dem erfindungsgemäßen Aufbau entsprechen.**

Die Herstellung von OLEDs erfolgte nach dem im folgenden skizzierten allgemeinen Verfahren. Dieses mußte im Einzelfall auf die jeweiligen Gegebenheiten (z. B. Schichtdickenvariation, um optimale Effizienz bzw. Farbe zu erreichen) angepaßt werden. Für die Herstellung der erfindungsgemäßen Vorrichtungen wurde die separate Lochblockierschicht weggelassen, in manchen der Beispiele außerdem die Elektronentransportschicht, und die Emitterschicht wurde entsprechend der obigen Beschreibung gestaltet.

Erfindungsgemäße Elektrolumineszenzvorrichtungen können, wie beispielsweise in der Patentanmeldung DE10330761.3 beschrieben wurde, dargestellt werden.

#### **Beispiele:**

In den folgenden Beispielen werden die Ergebnisse verschiedener OLEDs vorgestellt. Der grundlegende Aufbau, wie die verwendeten Materialien und Schichtdicken, außer der HBL, waren zur besseren Vergleichbarkeit identisch. Analog dem o. g. allgemeinen Verfahren wurden emittierende OLEDs mit folgendem

5 Aufbau erzeugt:

PEDOT (HIL) 60 nm (aus Wasser aufgeschleudert; PEDOT bezogen von H. C. Starck; Poly-[3,4-ethyendioxy-2,5-thiophen])

NaphDATA (HTM) 20 nm (aufgedampft; NaphDATA bezogen von SynTec; 4,4',4''-Tris(N-1-naphthyl-N-phenyl-amino)-triphenylamin

10 S-TAD (HTM) 20 nm (aufgedampft; S-TAD hergestellt nach WO99/12888; 2,2',7,7'-Tetrakis(diphenylamino)-spirobifluoren)

Emitter-Schicht: genauer Aufbau siehe Beispiele in Tabelle

15 BCP (HBL) ggf. 10 nm; siehe Vergleichsbeispiele in Tabelle

AlQ<sub>3</sub> (ETL) nicht in allen Fällen verwendet (siehe Tabelle); wenn vorhanden: 10 nm (aufgedampft; AlQ<sub>3</sub> bezogen von SynTec; Tris(hydroxychinolino)aluminium(III))

Ba-Al (Kathode) 3 nm Ba, darauf 150 nm Al

20

Diese **nicht** optimierten OLEDs wurden standardmäßig charakterisiert; hierfür wurden die Elektrolumineszenzspektren, die Effizienz (gemessen in cd/A) und die Leistungseffizienz (gemessen in lm/W) in Abhängigkeit von der Helligkeit, berechnet aus Strom-Spannungs-Helligkeit-Kennlinien (IUL-Kennlinien), und die Lebensdauer

25 bestimmt. Unter Lebensdauer versteht man die Zeit, nach der die Anfangshelligkeit der OLED bei einer konstanten Stromdichte von 10 mA/cm<sup>2</sup> auf die Hälfte gesunken ist.

In Tabelle 1 sind die Ergebnisse verschiedener Beispiele zusammengefaßt. Die Zusammensetzung der gesamten EMLs und HBLs inklusive der entsprechenden Schichtdicken ist aufgeführt. Ebenso ist angegeben, ob eine separate Elektronentransportschicht verwendet wurde (Beispiele 1 bis 3) oder nicht (Beispiel 4). Die dotierten phosphoreszierenden EMLs enthalten als Matrixmaterial M1 die Verbindung Bis(9,9'-spiro-bifluoren-2-yl)keton und als Matrixmaterial M2 die

35 Verbindung Bis(9,9'-spiro-bifluoren-2-yl)sulfoxid; in der Tabelle ist lediglich der Emitter und die Lochblockierschicht (HBL) (falls vorhanden) aufgeführt. In den aufgeführten Beispielen, die dem erfindungsgemäßen Aufbau entsprechen, besteht die EML aus einer 30 nm dicken dotierten Zone und einer darauf folgenden 10 nm dicken undotierten Zone.

Die in der Tabelle 1 verwendeten Abkürzungen entsprechen den folgenden Verbindungen:

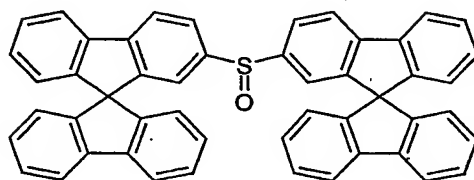
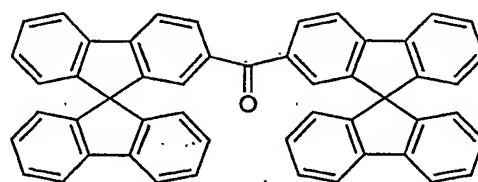
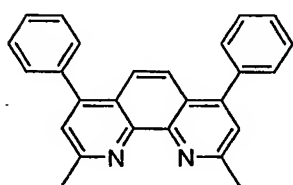
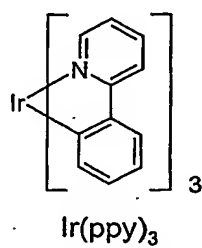
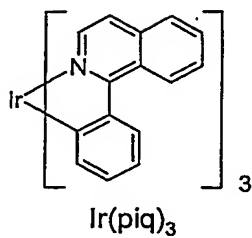


Tabelle 1:

Experiment	EML	EML	HBL	ETL	Max. Effizienz (cd/A)	Max. Leistungseffizienz (lm/W)	Spannung (V) bei 100cd/m <sup>2</sup>	CIE (x, y)	Lebensdauer (h) bei 10 mA/cm <sup>2</sup>
Beispiel 1a)	M1:20% Ir(piq) <sub>3</sub> (30 nm)	M1 (10 nm)	-	AlQ <sub>3</sub> (10 nm)	6.6	3.7	5.4	(0.69, 0.31)	>>10000 (extrapoliert); 10% Abfall nach 690 h
Beispiel 1b) Vergleich	M1:20% Ir(piq) <sub>3</sub> (30 nm)	-	BCP	AlQ <sub>3</sub> (10 nm)	4.6	2.2	6.5	(0.68, 0.32)	256
Beispiel 2a)	M2:20% Ir(ppy) <sub>3</sub> (30 nm)	M2 (10 nm)		AlQ <sub>3</sub> (10 nm)	16.2	7.9	6.1	(0.33, 0.61)	
Beispiel 2b) Vergleich	M2:20% Ir(ppy) <sub>3</sub> (30 nm)		BCP	AlQ <sub>3</sub> (10 nm)	13.4	6.5	6.3	(0.33, 0.61)	
Beispiel 3a)	M1:20% Ir(ppy) <sub>3</sub> (30 nm)	M1 (10 nm)	-	AlQ <sub>3</sub> (10 nm)	34.1	32.1	3.4	(0.36, 0.60)	368
Beispiel 3b) Vergleich	M1:20% Ir(ppy) <sub>3</sub> (30 nm)		BCP	AlQ <sub>3</sub> (10 nm)	31.8	15.6	4.8	(0.36, 0.60)	357
Beispiel 4	M1:20% Ir(ppy) <sub>3</sub> (30 nm)	M1 (20 nm)	-	-	34.5	41.4	3.1	(0.36, 0.60)	423

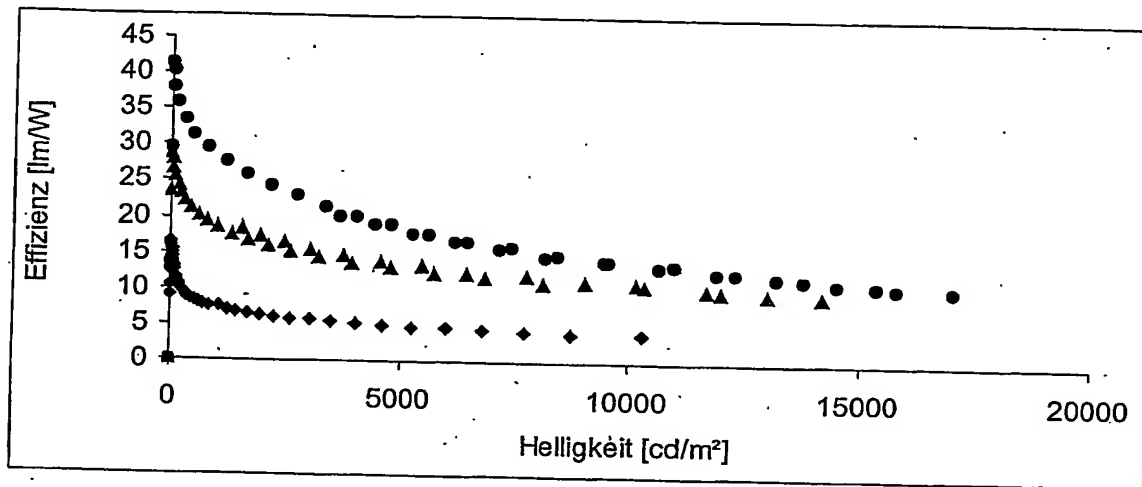
Legende:

5 M1 = Bis(9,9'-spiro-bifluoren-2-yl)keton

M2 = Bis(9,9'-spiro-bifluoren-2-yl)sulfoxid

In Figur 9 ist exemplarisch die Leistungseffizienz ( $\text{lm/W}$ ) der Dotierung von  $\text{Ir(ppy)}_3$  in M1 einmal dem neuen Designprinzip folgend (aus Experiment 3a),  $\blacktriangle$  und einmal dem Vergleichsstandard entsprechend (aus Experiment 3b),  $\blacklozenge$  dargestellt. Die Leistungseffizienz aus Experiment 3a ist etwa doppelt so hoch. Die

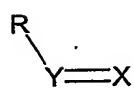
- 5 Leistungseffizienz (aus Experiment 4,  $\bullet$  ohne HBL und ohne ETL ist nochmals etwa 30 bis 50 % höher.



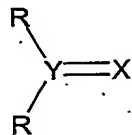
Figur 9: Leistungseffizienz in Abhängigkeit der Helligkeit.

- 10 Zusammenfassend kann gesagt werden, daß OLEDs, gefertigt nach dem neuen Designprinzip, eine höhere Effizienz bei niedrigeren Spannungen und längeren Lebensdauer aufweisen, wie man leicht aus Tabelle 1 entnehmen kann.
- 15 Insbesondere wenn keine separate Elektronentransportschicht verwendet wird, die Matrixschicht also direkt an die Kathode oder die Elektroneninjectionsschicht grenzt, ist die Spannung besonders niedrig und damit die Leistungseffizienz besonders hoch.

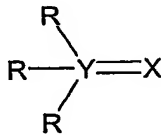
1. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung, enthaltend eine Anode, eine Kathode und mindestens eine Matrixschicht, enthaltend mindestens ein Matrixmaterial, welches eine Struktureinheit der Formel  $Y=X$  enthält, wobei X mindestens ein nicht-bindendes Elektronenpaar aufweist und wobei der Rest Y für C, P, As, Sb, Bi, S, Se oder Te und der Rest X für N, O, S, Se oder Te, und welches mit mindestens einem phosphoreszierenden Emitter dotiert ist, dadurch gekennzeichnet, daß sich die Dotierungszone des Emitters in der Matrix senkrecht zur Schicht nur über einen Teil der Matrixschicht erstreckt.
2. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß sie als Matrixmaterial eine Verbindung gemäß Formel (1) bis (4) (Schema 1) enthält,



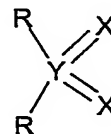
Formel (1)



Formel (2)



Formel (3)



Formel (4)

(Schema 1)

wobei die verwendeten Symbole folgende Bedeutung haben:

Y ist gleich C in Formel (2) und ist gleich P, As, Sb oder Bi in Formel (1) und (3) und ist gleich S, Se oder Te in Formel (1), (2) und (4);

X ist bei jedem Auftreten gleich oder verschieden  $NR^1$ , O, S, Se, Te;

R ist bei jedem Auftreten gleich oder verschieden H, F, CN,  $N(R^1)_2$ , eine geradkettige, verzweigte oder cyclische Alkyl-, Alkoxy- oder Thioalkoxygruppe mit 1 bis 40 C-Atomen, die mit  $R^2$  substituiert oder auch unsubstituiert sein kann, wobei ein oder mehrere nicht benachbarte  $CH_2$ -Gruppen durch  $-R^2C=CR^2-$ ,  $-C\equiv C-$ ,  $Si(R^2)_2$ ,  $Ge(R^2)_2$ ,  $Sn(R^2)_2$ ,  $C=O$ ,  $C=S$ ,  $C=Se$ ,  $C=NR^2$ ,  $-O-$ ,  $-S-$ ,  $-NR^2-$  oder  $-CONR^2-$  ersetzt sein können und wobei ein oder mehrere H-Atome durch F, Cl, Br, I, CN,  $B(R^2)_2$ ,  $Si(R^2)_3$  oder  $NO_2$  ersetzt sein können, oder eine Aryl-, Aryloxy- oder Heteroarylgruppe mit 1 bis 40 C-Atomen, die durch ein oder mehrere Reste  $R^1$ , CN,  $B(R^2)_2$  oder  $Si(R^2)_3$  substituiert sein können, wobei mehrere Substituenten R miteinander ein mono- oder polycyclisches, aliphatisches oder aromatisches Ringsystem bilden können;

$R^1$  ist bei jedem Auftreten gleich oder verschieden eine geradkettige, verzweigte oder cyclische Alkyl- oder Alkoxykette mit 1 bis 22 C-Atomen, in der auch ein oder mehrere nicht benachbarte C-Atome durch  $-R^2C=CR^2-$ ,

-C≡C-, Si(R<sup>2</sup>)<sub>2</sub>, Ge(R<sup>2</sup>)<sub>2</sub>, Sn(R<sup>2</sup>)<sub>2</sub>, -NR<sup>2</sup>-, -O-, -S-, -CO-O-, -O-CO-O- ersetzt sein können, wobei auch ein oder mehrere H-Atome durch Fluor ersetzt sein können, eine Aryl-, Heteroaryl- oder Aryloxygruppe mit 1 bis 40 C-Atomen, welche auch durch ein oder mehrere Reste R<sup>2</sup> substituiert sein können oder OH oder N(R<sup>2</sup>)<sub>2</sub>;

R<sup>2</sup> ist bei jedem Auftreten gleich oder verschieden H oder ein aliphatischer oder aromatischer Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 20 C-Atomen; und mit der Maßgabe, daß die Molmasse des Matrixmaterials größer 150 g/mol ist.

3. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß Anspruch 1 und/oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß Y = C, P, S und X = O entspricht.

4. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, dass mindestens einer der Reste R mindestens ein sekundäres, tertiäres oder quartäres Atom enthält.

5. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, dass mindestens einer der Reste R ein quartäres Atom enthält.

6. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, dass mindestens einer der Reste R ein 9,9'-Spirobifluorenderivat, ein 9,9-disubstituiertes Fluorenderivat, ein 6,6- und/oder 12,12-di- oder tetrasubstituiertes Indenofluorenderivat, ein Triptycenderivat, ein Dihydrophenanthren-Derivat, ein Hexaarylbenzolderivat oder ein Tetraarylmethanderivat enthalten.

7. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, dass mindestens einer der Reste R ein 9,9'-Spirobifluorenderivat enthalten.

8. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß die Glasstemperatur T<sub>g</sub> des Matrixmaterials größer als 100 °C ist.

9. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, dass die organische Elektrolumineszenzvorrichtung eine oder mehrere Lochinjektions- (HIL) und/oder eine oder mehrere Lochtransportschichten (HTL) enthält.



10. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, dass die organische Elektrolumineszenzvorrichtung eine oder mehrere Elektronentransport- (ETL) und/oder eine oder mehrere Elektroneninjectionsschichten (EIL) enthält.

5

11. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, daß eine oder mehrere Dotierungszonen in der Matrixschicht und eine oder mehrere undotierte Zonen in der Matrixschicht vorhanden sind und eine undotierte Zone in der Matrixschicht an die Elektronentransportschicht ETL (bzw. EIL bzw. Kathode) angrenzt und eine Dotierungszone in der Matrixschicht an die Lochtransportschicht HTL (bzw. HIL bzw. Anode) angrenzt.

10

15

12. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, daß eine oder mehrere Dotierungszonen in der Matrixschicht und eine oder mehrere undotierte Zonen in der Matrixschicht vorhanden sind und eine undotierte Zone in der Matrixschicht an die Lochtransportschicht HTL (bzw. HIL bzw. Anode) angrenzt und eine Dotierungszone in der Matrixschicht an die Elektronentransportschicht ETL (bzw. EIL bzw. Kathode) angrenzt.

20

25

13. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, daß eine oder mehrere Dotierungszonen in der Matrixschicht und eine oder mehrere undotierte Zonen in der Matrixschicht vorhanden sind und eine undotierte Zone in der Matrixschicht an die Elektronentransportschicht ETL (bzw. EIL bzw. Kathode) und eine undotierte Zone an die Lochtransportschicht HTL (bzw. HIL bzw. Anode) angrenzt.

30

14. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, daß eine oder mehrere Dotierungszonen in der Matrixschicht und eine oder mehrere undotierte Zonen in der Matrixschicht vorhanden sind und eine Dotierungszone in der Matrixschicht an die Elektronentransportschicht ETL (bzw. EIL bzw. Kathode) und eine Dotierungszone an die Lochtransportschicht HTL (bzw. HIL bzw. Anode) angrenzt.

35

15. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 14, dadurch gekennzeichnet, daß die dotierte oder undotierte

Matrixschicht direkt an die Kathode bzw. die Elektroneninjektionsschicht (EIL) grenzt.

5 16. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 15, dadurch gekennzeichnet, daß die dotierte oder undotierte Matrixschicht direkt an die Lochinjektionsschicht (HIL) oder direkt an die Anode grenzt.

10 17. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß einem oder mehreren der Ansprüchen 1 bis 16, dadurch gekennzeichnet, daß die Schichtdicke der Dotierungszone zwischen 98 % bis 40 %, der Matrixschichtdicke beträgt.

18. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 17, dadurch gekennzeichnet, daß die Schichtdicke der Matrixschicht eine Dicke von 1 bis 150 nm aufweist.

20 19. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß einem der Ansprüche 1 bis 18, dadurch gekennzeichnet, daß das Matrixmaterial im sichtbaren Spektralbereich zwischen 380 nm und 750 nm bei einer Filmdicke von 30 nm eine Extinktion kleiner 0.2 aufweist.

25 20. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 19, dadurch gekennzeichnet, daß als phosphoreszierender Emmitter eine Verbindung enthalten ist, die mindestens ein Atom der Ordnungszahl größer 36 und kleiner 84 aufweist.

30 21. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß der phosphoreszierende Emmitter mindestens ein Atom der Ordnungszahl größer 56 und kleiner 80 aufweist.

35 22. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß Anspruch 21, dadurch gekennzeichnet, daß der phosphoreszierende Emmitter Molybdän, Wolfram, Rhenium, Ruthenium, Osmium, Rhodium, Iridium, Palladium, Platin, Silber, Gold oder Europium enthält.

23. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 22, dadurch gekennzeichnet, daß eine oder mehrere Schichten mit einem Sublimationsverfahren hergestellt werden.

24. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 22, dadurch gekennzeichnet, daß eine oder mehrere Schichten mit dem OVPD (Organic Vapour Phase Deposition) Verfahren aufgebracht werden.
- 5 25. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 22, dadurch gekennzeichnet, daß eine oder mehrere Schichten mit einem Druck-Verfahren beschichtet werden.
- 10 26. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß Anspruch 25, dadurch gekennzeichnet, daß eine oder mehrere Schichten mit dem LITI (Light Induced Thermal Imaging) Verfahren beschichtet werden.
- 15 27. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß Anspruch 25, dadurch gekennzeichnet, daß eine oder mehrere Schichten mit dem Ink-Jet (Tintenstrahl Druck) Verfahren beschichtet werden.

## Organisches Elektrolumineszenzelement

- 5 Die vorliegende Erfindung betrifft die Verbesserung organischer  
Elektrolumineszenzvorrichtungen, die dadurch gekennzeichnet sind, daß sie aus  
einem bestimmten Matrixmaterial bestehen, welches mit mindestens einem  
phosphoreszierenden Emitter dotiert ist, und dadurch gekennzeichnet ist, daß sich  
die Dotierungszone des Emitters in der Matrix senkrecht zur Schicht nur über einen  
10 Teil der Matrixschicht erstreckt.

# Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/EP04/013315

International filing date: 24 November 2004 (24.11.2004)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: DE  
Number: 103 55 381.9  
Filing date: 25 November 2003 (25.11.2003)

Date of receipt at the International Bureau: 08 February 2005 (08.02.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland  
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record.**

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☒ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☒ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**